⑩ B 本国特許庁(JP)

⑩特許出願公表

母公 表 特 許 公 報(A)

平5-502686

母公表 平成5年(1993)5月13日

©int.Cl.⁵ C 08 G 18/61 C 08 L 75/04 識別記号 NEM NGJ JFB 庁内整理番号 8620-4 J 8620-4 J 8620-4 J ※ 審查 請求 未請求 予備審查請求 有

部門(区分) 3(3)

(全 8 頁)

❷発明の名称

改良された性質を持つ湿分硬化ポリウレタンシーリングコンパウンド

②特 頤 平3-501237 ❸②出 頭 平2(1990)12月17日 ●翻駅文提山日 平4(1992)6月26日●図 際 出 頭 PCT/EP90/02212

砂国際公開番号 WO91/09893

愈国際公開日 平3(1991)7月11日

優先権主張

図1989年12月27日図ドイツ(DE)図P3943090.1

◎発明者 ポドラ、トーレ

ドイツ連邦共和国 デイー4019 モーンハイム、ドイフサー・シュ

トラアセ 31番

の出 願 人 ヘンケル・コマンデイットゲゼ ルシヤフト・アウフ・アクチエ ドイツ連邦共和国 デイー4000 デュッセルドルフ 13、ヘンケル

シュトラアセ 67番

ン

⑩代理人 弁理士 青山 葆 外1名

動指定 国

AT(広域特許), BE(広域特許), CA, CH(広域特許), DE(広域特許), DK(広域特許), ES(広域特許), FR(広域特許), GB(広域特許), GR(広域特許), IT(広域特許), JP, LU(広域特許), NL(広域特許), SE(広域特許), US

最終頁に続く

請求の範囲

1. 充填剤、可塑剤および/または他の添加剤を含んでいてよい NCO末端ポリウレタンプレポリマー系因分硬化接合コンパウンド において、緊要条件下で長期安定性を改良するために反応性ポリシ ロキサンを含むことを特徴とする盈分硬化接合コンパウンド。

2. ポリウレタンプレポリマーの量に対して反応性ポリシロキサンを1~30食量%の量、特に5~20重量%の量で含むことを特徴とする請求項1記載の接合コンパウンド。

3. 反応性ポリシロキサンはポリウレタンプレポリマーと、および/または担分硬化の結果としてそれから形成される化合物と反応する1個またはそれ以上の官能器を含むことを特徴とする請求項1または2記載の接合コンパウンド。

4. エポキシ変性および/またはシラノール変性ポリシロキサン、 舒ましくはヒドロキシ末端ポリジメチルシロキサンを含むことを特 数とする額求項1~3のいずれかに記載の接合コンパウンド。

5、反応性ポリシロキサンは23℃で20~500Pa.s、好ま

しくは50~400Pa.sの粘度を持つことを特徴とする接合コン

パウンド。

6. - 20~40重量%のポリウレタンプレポリマー、

- 20~40重量%の影響性ポリマー粉末、

- 15~35賞貴米の可塑剤(影理剤)、

- 1~10重量%の影風助剤、

- 1~10重量%の餌料および染料、

- 0.2~12重量%の反応性ポリシロキサン、

- 1~10重量%の安定剤、および

- 必要あれば0.01~10重量外の放体および他の権助利 を含んでなることを特徴とする請求項1~5のいずれかに記載の接 合コンパウンド。

7. - 25~35重量%のポリウレタンプレポリマー、

- 25~85重量%の影響性ポリマー粉末、

- 20~30重量光の可塑剤(影器剤)、

- 3~7重量%の影震助剤、

- 4~9世世光の毎科および染料、
- 1~10重量%の反応性ポリシロキサン。
- 1~5重量%の安定剤、および
- 必要あればり、01~2重量%の触ばおよび位の抽助剤を 含んでなることを特徴とする関求項1~6のいずれかに記載の接合 コンパウンド。
- 8. ポリウレタンプレポリマーとしてポリエーテルポリオールと 通期のジイソシアネートとの反応生成物を含むことを特徴とする禁 東項1~7のいずれかに配載の接合コンパウンド。
- 9. 影測性ポリマー粉末としてイソシアネート不活性ポリマー、 特にポリ塩化ビニル(PVC)を含むことを特徴とする請求項1~ 8のいずれかに記載の接合コンパウンド。
- 10. 可型剤としてクロロバラフィンおよび/またはPVC可型 剤、特にフタル酸エステルおよびアルキルスルホン酸エステル等の 可型化エステルを含むことを特徴とする額求項1~9のいずれかに 記載の接合コンパウンド。

明相

改良された性質を持つ超分硬化ポリウレタン

シーリングコンパウンド

本発明はNCO末端ポリウレタンプレポリマー系温分硬化接合コンパウンドに関し、特に反応性ポリシロキサンを加えることによる 改良された性質を持つ温分硬化接合コンパウンドに関する。

超分硬化ポリウレタン系シーリングコンパウンドは、例えばドイッ特許37 26 547により専門家に公知である。それらは本質的にイソシアネート末端ポリウレタンプレポリマーと、チクソトロピー剤または充填剤としてその中に存在する影団ポリマーよりなる。さらに可塑剤、影理助剤、顕料、染料、安定剤、放媒および他の補助剤が、追加成分としてドイツ特許37 26 547に述べられている。原知のポリウレタン接合コンパウンドはそれらに対する厳密な要調をかなり満たしているが、改善しなければならない点もいくつかある。これは特に耐失性に当てはまる。この点に関してUV安定性が重要である。目視による評価以外に質快接合コンパウンドの

11. 豚腐助剤としてエスチル、ケトン、脂肪放敗化水素および 特に芳香複数化水素等の有機搭削が使用されることを特徴とする情 水項1~10のいずれかに記載の接合コンパウンド。

12. 安定剤としてC₈₋₃₃オレフィン、特に分子の分枝のないことが好ましいエチレン性不飽和炭化水素を含むことを特徴とする領水項1~11のいずれかに記載の接合コンパウンド。

長期安定性を挟める主要な評価基準は、本発明が改良しようとする 破断時件びである。糸ひ合性や平滑性等の加工性等に関しても改良 が望まれる。

例えばドイツ特許公開32 21 655により、ベンゾフェノンまたはトリアゾール誘導体等のUV収収剤を、UV安定性を改良するためにシーリングコンパウンドに加えることができることは、専門家には公知である。これらの吸収剤は、永久的ではないが増大したUV安定性を提供する。ポリシロキサン系接合コンパウンドは選常、対応するポリウレタンシーリングコンパウンドより高いUV安定性を示すことは専門家に公知である。しかしながら、市原ポリシロキサンシーリングコンパウンドは適常、例えば延騰性が低い、ベとつく、および加工中に悪臭を放つ等、ある用途には望ましくない性質を持つ。二成分の混合物が、少なくともかなりの努力で製造されたが、貯蔵性に関しては全く不十分、言い替えればこの系は分離し島い傾向があった。分散助剤および/または乳化剤等の添加剤によりこの傾向を取り除く試みは、複合コンパウンドの他の性筋の質

ましくない劣化を招く。

耐機安定性を改良するためにポリウレタンシーリングコンパウンドにおいて反応性ポリシロキサンを使用することは、いまだ専門家に公知でない。シロキサンおよびウレダンの化合物は原理的には公知であるが、これらの化合物はその分子構造が本発明と異なり、および/または異なった技術分野で使用されている。すなわちヨーロッパ特許250248には、ジアミノポリシロキサンとジイソシアネートからつくられ、感圧性(技験)接着剤として使用されるポリシロキサンとウレダンセグメントを有するブロックコポリマーが記載されている。ヨーロッパ特許293084によると、反応性ポリシロキサンが、減降性を改良するためにポリウレタン光沢塗料中に存在する。

本発明が解決しようとする問題は、路鉄条件下、特にUV照射に 付きれる路鉄条件下で改良された長期安定性を示す選分硬化ポリウ レタン接合コンパウンドを提供することである。さらに、本発明の 湿分硬化ポリウレタン接合コンパウンドは糸ひを性および平滑性等。

プロパンまたはトリメチロールエタン等のトリオール、およびペン タエリスリトール等の高級ヒドロキシ化合物である。

ポリエーテルポリオールおよび/またはポリエステルポリオール が止較的高分子量のポリオール成分として一般的に使用される。ポ リエーテルポリオールはエポキサイドまたはテトラヒドロフランと、 低分子量ポリオール成分との反応によって調製することができる。 エポキサイドは例えば、エチレンオキサイド、プロピレンオキサイ ド、プテレンオキサイド、ステレンオキサイド、シクロヘキセンオ キサイド、トリクロロブテレンオキサイドおよびエピクロルヒドリ ンであり、一方、ポリオールは例えば、エチレン、ジエチレンまた はプロピレングリコール等の化合物である。

ポリウレタンプレポリマーに対する出発原料としてのポリエステルは通常、ヒドロキシ化合物とカルポン酸との反応によって調製される。既に述べた低分子量多価ヒドロキシ成分がヒドロキシ化合物として使用できる。酸成分はアジピン酸、フタル酸、シュウ酸、マレイン酸、コハク酸、ゲルタル酸、アゼライン酸、セバシン酸等の

感だって改良された加工性を示す。

本発明によればこの問題は、露接条件下で長期安定性を改良する ための反応性ポリシロキサンを含むことを特徴とする、必要あれば 充填剤、可塑剤および/または他の添加剤を含むNCO末端ポリウ レタンプレポリマー系選分硬化接合コンパウンドによって解決される。

本発明の温分硬化接合コンパウンドは、1分子当り平均して2個 以上のイソシアネート基を持つポリウレタンプレポリマーを含む。 ポリウレタンプレポリマーは、2以上の官能値を持つアルコールと、 2以上の官能値を持つ過剰のイソシアネートとを混合することによ り調製できる。生成物の性質は使用量に影響される。

差当なポリオール収分は低分子量および高分子量化合物の収力である。ポリウレタンプレポリマーのためにポリオール収分として使用される低分子量化合物は例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、ブタン・1、4-ジオール、ヘキサン-1、6-ジオール、およびグリセロール、トリメチロール

化合物、およびトリカルボン酸である。ボリウレクンプレボリマーの製造のために適したボリエステルは、例えばε-カプロラクトンまたはメチルーε-カプロラクトン等の開頭宣合によっても得られる。 しかしながらボリエステルおよびボリエーテルに加えて、天然物質、たとえばいわゆる油貨化学的ボリオールまたはひまし袖がボリオール成分として使用できる。

本発明によれば、好ましいポリオールはポリエーテルポリオール であり、特にグリセロール、プロピレンオキサイド付加化合物およ びポリプロピレングリコールの反応によって得られるタイプのポリ エーテルポリオールである。

芳香族および脂肪族および/または路球式イソシアネートの双方 がイソシアネート成分として使用される。 2 以上の官能価を持つ適 当なイソシアネートは例えば、トリレンジイソシアネートの異性体、 イソホロンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシア ネート、テトラメテレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメテ レンジイソシアネート、トリメチルキシレンジイソシアネート、ヘ キサメチレンジイソシアネートおよびジフェニルメタンジイソシア ネート、または例えば4.4'.4"-トリフェニルメタントリイソシ アネート等のトリイソシアネートである。本発明によれば、芳香娘 ジイソシアネート、特に工業的ジフェニルメタン-4.4"-ジイソシ アネート (MDI) およびトリレン-2.4-ジイソシアネート (T

好ましい1つの意様では、ポリウレタンプレポリマーはグリセロール/プロピレンオキサイド付加化合物および/またはポリプロピレングリコールと、工策的ジフェニルメタンジイソシアネートおよび/または工業的トリレンジイソシアネートとの反応によって調製される。イソシアネートは、生成したポリウレタンプレポリマーが反応性NCO基を含む様に、過剰に使用されることが好ましい。

接合コンパウンドの安定性は、一般的に充填剤としても公知の固 形骸粒子を悉加して違成される。一般に充填剤は適用後、接合の差 度方向に膨れ上がることまたは移行することを防止するに必要な内 部級集モシーリングコンパウンドが持つことを保証する。上記添加

プレポリマーのイソシアネート基と反応してはならない。従って例 えばポリ塩化ビニル粉末がチケソトロピー剤として添加される場合、 フタル酸エスチル類からの可塑剤が使用される。フタル酸エステル 類からの適当な化合物の例はフタル酸ジオクチル、フタル酸ジブチ ルおよびフタル酸ペンツルブチルである。要額される性質を持つ他 の類の化合物はクロロパラフィン、フェノールまたはクレゾールな どのアルキルスルホン酸エステル、および脂肪酸エステルである。 アルキルスルホン酸エステル系可塑剤、および影潤性ポリマー粉末 としてのポリ塩化ビニルが本発明の目的のために特に造している。

算機の影響に対する長期安定性を改良するため、本発明の接合コンパウンドは反応性ポリシロキサンを含有する。反応性ポリシロキサンとは、シーリングコンパウンドのイソシアネート来増、および
/または違分硬化によりそれから生じる化合物と反応する少なくとも一つの基を主意または倒撃に含むポリシロキサンである。この様なポリシロキサンは例えば、エポキシ変性ポリシロキサン、ポリハイドロジェンアルキルシロキサンおよび/またはシラノール変性ポ

割または充填剤は、餌料と、チクソトロピー化充填剤、または略してチクソトロピー化剤として知られる充填剤に分けられる。ポリウレタンプレポリマー系接合コンパウンドの場合、チクソトロピー剤は別な要徴にも合致しなければならない。例えば、イソシアネート基と窒ましくない反応があってはならない。従ってチクソトロピー剤は基本的に影調性ポリマー粉末から選択できる。適当なポリマー粉末の例はポリアクリロニトリル、ポリウレタン、ポリ塩化ピニル、ポリアクリレート、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセテートおよび対応するコポリマーである。微粉末ポリ塩化ビニルで特に良い結果が得られる。

ポリウレチン接合コンパウンドの性質は、チクソトロピー剤として使われるポリマー粉末に追加成分を添加することにより、さらに改良される。これらの追加成分は可塑剤、またはむしろプラスチックに使用される影響剤および影響助剤の部類に入る物質である。この点に関し、プレポリマー/ポリマー粉末/可塑剤/影響助剤系の最適組成を挟めることが必要である。例えば、可塑剤と影響助剤は

リシロキサンである。エポキシ変性シロキサンは、専門家には変性 エポキシアルキル側線基を含む化学的反応性シリコーン油であると 理解されている。さらにポリメチルハイドロジェンシロキサンも反 応性ポリシロキサンとして存在してよい。シラノール変性シロキサ ンは、少なくとも一つの末端シラノール基を含むアルキルシロキサ ンポリマーである。これらのいわゆるシラノール油は、異型的なシ リコーン油の反応性類似体と見なされる。本発明の接合コンパウン ドには、好ましくはヒドロキシ末端ポリジメチルシロキサンが含ま

本発明の接合コンパウンドの高級の影響、特に素外級の影響に対する長期安定性の改良の正確な理由はいまだ充分には明白にされていないが、かなり改良されることは事実である。これは胚知のポリウレタン接合コンパウンドと比較した本発明のמ機接合コンパウンドの表面の目復による評価、および仲び値、特に破断時件びの双方に当てはまる。本発明の接合コンパウンドは、従来のポリウレタン接合コンパウンドよりもかなり優れた糸ひき性および平庸性を示す。

E 1. 20

本発明の接合コンパウンドはまた、触れて容易に分かる様に、より 滑らかな底触を持つ。本発明の接合コンパウンドはまた触れて分か る様に、硬化中の被理形成後、ポリウレタン接合コンパウンドに負 音的な差面粘着性の明白な減少を示す。

改良された上記性質はとりわけ、二つの基本的には度和しない、 または遅和しにくい、および/または痒永久的には遅和しない液体 か化学接合で相互に結合し、そのためにそれらが分離できないとい う事実に得せられる。しかしながら間時に光学的な印象は、本質的 に適明なポリウレタンプレポリマーを本質的に適明な反応性シロキ サンと混合したとき、遅合物が不適明または最った状態になるか、 または数分散エマルジョンの様相を長するという事実で説明される 二相系の印象である。反応基が実端にあることが好ましい反応性ポ リシロキサンは、混合中にポリイソシアネート基および/または没 分硬化によりそれから生成するポリウレタンプレポリマーの基と反 応することができ、そのため分散が永久的に抑制される。

好ましい整様の一つでは、反応性ポリシロキサンはポリウレタン

るまで劣化する。 さらに高いポリシロキサン含有量は一般的にべと ついた感じを有する朽れ島い装面と、破断時伸びの減少を招く。

本発明に指摘された問題を解決する選分硬化接合コンパウンドは
20~40重量%のポリウレタンプレポリマー、20~40重量%
の能調性ポリマー粉末、15~35重量%の可塑剤または能調剤、
1~10重量%の影調助剤、0.2~12重量%の反応性シロキサ
ン、1~10重量%の競科および染料、1~10%の安定剤および
必要あれば0.01~10重量%の触媒および他の補助剤を含んで
なる。

退した影画動剤は、ポリマー粉末および可塑剤と摂和できるが、 ポリウレタンプレポリマーのイソシアネート基と反応しない低分子 量有機物質である。この様な影温動剤の例はポリマーおよびプラス チックに関する関連の専門ハンドブックに見いだされる。ポリ塩化 ビニル粉末に対する好ましい影温助剤はエステル、ケトン、脂肪族 炭化水素、芳香液炭化水素およびアルキル関熱基を含む芳香族炭化 水素である。最後に述べた影画助剤、特にキシレンは、本類明にお プレポリマーの反応性基と反応できる反応性基をただ一つだけ含み、 そのため反応後、ポリシロキサンはポリウレタン高分子の末端を形 成する。本発明の接合コンパウンドはこの場合に、都合のよい加工 性を示す。

本売明の接合コンパウンドの加工性、およびその長期安定性には、
23℃で25~500Pa.sの範囲、好ましくは50~400Pa.s
の範囲の反応性ポリシロキサンの制度が都合よい。

反応性ポリシロキサンの量とポリウレタンプレポリマーの量との 比率はまた、接合コンパウンドの上配性質を最適化し改良するため の重要な要素である。ポリウレタンプレポリマーの量に対して1~ 30重量%、特に5~20重量%の量の反応性ポリシロキサンが好ましい。反応性シロキサンが1重量%より少ない場合、接合コンパウンドの郵接安定性に顕著な改良をもたらさない。30重量%より 多い反応性シロキサンを含む接合コンパウンドは同様に加工できるが、それらは性能に望ましくない顕著な劣化をもたらす。例えば、 それらの強性、特にレジリエンスは露候後、表面に収縮亀裂が現れ

いてポリ塩化ビニルに対する好ましい影響助剤として使用される。

本発明の接合コンパウンドに使用される類料および染料は、二酸化チタン、酸化鉄およびカーボンブラック等の、通常使用されるどの様な公知の物質であってもよい。接合コンパウンドの保存安定性は塩化ベンゾイル、塩化アセチル、トルエンスルホン酸メチルエステル、カルボジイミドおよび/またはポリカルボジイミド等の安定剤の添加により改良されることは公知である。8~20炭素原子を育するオレフィンが特に優れた安定剤であることがわかっている。その安定化効果の他、これらの安定剤は可塑剤および影園剤の役目も果たすことができる。特に二重接合が1.2-位にある場合、8~18炭素原子を育するオレフィンを使用することが肝ましい。これらの安定剤の分子構造が様状であるとき、最良の結果が得られる。接合コンパウンドはさらにまた、反応を促進するため、触媒、例

及びリプテル偏ソラウレート、リプテル縄リアセテートおよび/またはオクタン酸解 (II) そ始値量で含む。本発明において、例えば 変化剤、乾燥剤およびカップリング剤等が他の締動剤である。

本発明の接合コンパウンドに使用されるポリウレタンプレポリマ --、ポリマー粉末、可愛剤、影器剤、無料および染料、反応性ポリ シロキサン、安定剤、触媒および他の補助剤からなる混合物は、接 合コンパウンドが満足しようとする特定の要請に合取するよう配合 されなければならない。 本発明によると、好ましい接合コンパウン ドは25~35重量%のポリウレタンプレポリマー、25~35重 量%の影響性ポリマー粉末、20~30重量%の可塑剤または影響 刑、3~7世世光の影響助刑、4~9世世光の銀料および染料、1 ~5重量%の安定割および1~10重量%の反応性ポリシロキサン、 および必要あればり、01~2重量%の触媒および他の補助剤を含

以下、実施例により本発明を具体的に説明する。

<u>英族</u>男

以下の全ての実施例に使用されるポリウレタンは、

- 62重量部のポリプロピレングリコール
- 24重量部のボリエーテルボリオール、および

官能検査において、本発明に従う全ての実施界で糸ひき性および 平滑性等の加工性に顕著な改良が認められた。さらに一成分型ポリ ウレタン接合コンパウンドに特有の、被覆形成後の表面粘着性が原 者に兼少した。

富侠条件下での長期安定性の試験

特定の製中、接合コンパウンドから厚さ約3mの板を形成し、架 横後、以下の寸法を持った試験片を収から切り出した。

全長	# 980 sa
ヘッド幅	20 ==
ウエブ長	5 0 ==
ウエブ揺	10 as
年み	1.0-4.0 mm
謝定長	4 0 ==

引っ強り強度、破断時弁びおよびモジュラスをDIN 58 50 A(1975年版)およびISO/R37に従って測定した。

1 5 0 m/mis. フィード速度

- 15重量包の工業的ジフェニルメタン-4.4'-ジイソシアネ

- F (MDI)

より展製された。

350Pa.sの粘度を持つジヒドロキシボリジメテルシロキサン を反応性シロキサンとして使用した。接合コンパウンドは以下の様 にして無難した。

アルキルスルホン酸エステル、クロロパラフィン、PVC粉末ち よび餌料のペーストを70℃に加熱した。40℃に冷却後、プレポ リマーおよび他の成分を提はんしながら加え、30sbarで脱気した。

			天然外	(No.	.) .	
或分	1	2	3	4	5	6
PUプレポリマー	29	29	29	29	29	29
反応性ポリテロトリフ	0	0.5	1.0	2. 0	4.0	6.0
T8482842酸3248	18. 3	18. 1	17. 95	17. 6	17. 0	18. 3
90015717	7. 9	7.8	7. 75	7.6	7. 3	7. 1
PYC粉末	31. 3	31. 1	30. 8	30. 3	29. 2	28. 1
TiO:	5 -	5	5	5	5	5
他の数料と添加剤	8. 5	8. 5	8. 5	8. 5	8. 5	8. 5
(実施例1および2	は比較を	けである)			

加工性の試験

試験医師領 標準条件雰囲気 -

23℃/50%相対起皮

汎用試験機 引っ張り試験機

この装置はDIN 51 220による材料試験機に対する一般が イドライン、および加えられた食膏に関しDIN 51 221のク ラス1に対応する。

試験試料は「サンテスト・シーピーエス(SUNTEST CP S)」(往水、流通なし)中で露光した。

サイクル:

注水時間 10分 露光時間 1809 150 サイクル数

150サイクル後の舞光試料

特表平5-502686 (7)

本発明は充填剤、可量剤および/または他の抵加剤を含んでいて よい、末端NCO基を持ったポリウレタンプレポリマー系理分硬化 接合支援コンパウンドに関する。これらのコンパウンドはまた長期 副鉄性を向上する反応性ポリシロキサンをも含む。

No.	引っ張り強皮 N/sp ³	破断時伸び %	モジ : #/s	
			仲ぴ100%	仲 び600%
1	0. 98	1156	0.40	0. 68
2	0. 75	1138	0. 28	0. 66
3	0. 90	1144	0. 36	0. 65
4	1. 05	1257	0. 37	0.68
5 .	1. 01	1328	0. 32	0. 57
6	1.00	1372	0. 31	0.60

本発明に従う実施例において破断時伸びは反応性ポリシロキサン

含有量を増すと題者に増加し、一方仲ぴ100%および600%で のモジュラスはこのシリーズで顕著な減少を示すことが表から分か

実施例1~6の電光しない試験試料の破断時伸び、モジュラスお よび引っ張り強度は相互にほとんど差がない。

さらに戴光試験試料をスクールマークの原則に沿って目視で評価 した。は彼は料を表面の品質について評価した。それらは以下のマ

ークに従い、異なった程度のひび割れ形成(象皮)を示す。

NO.	4-7
1	5.0
2	4.5
3	3.0
4	2.5
5	2.0
6	2.0

国际共主综合	PCT/EP 90/02212
L CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER OF SHAPE SUSPENSION SURFACE SHAPE	***************************************
Asserting to Inspectional Policies Characteristics (PPC) or to both Replaced Characteristics and P	•
Int.C17: C 06 G 18/10	
I, FR.of Clabory	
Chemitation Dystain	
Int.Cl.: C 52 C	
Description Security offer than Observed to the Security to the Security to the Security on teacher in the Pale	
IN DECUMENTS COMMISSION TO SE SELEVANT!	
Calculate of December, "I wish hadronism, whose proprieties, of the related to	
X DE. A. 1629237 (HENREL) 3 March 1988, see colline 34 - column 7, line 9; claims 1-13	1-12
X SP, A, 0326704 (MORTON) 9 August 1909, see ps line 44 - page 3, line 38; claim 1, examples	
EP, A. 0305805 (BAYER) 8 March 1969, eee page lime 32 - page 7, lime 11; claims 1-7	2, 1-3
EP, A, 0258780 (KNOZZAPUCKI KAGAKU) 1 June 19 page 2, line 50 - page 9, line 28; claims 1-6	
A SP, A, 0259544 (BAYER) 16 March 1988, see pay line 50 - page 4, line 11; claims 1,2	a 2, 1-4
A Er. A. 0300304 (HERICEL) 25 January 1989	
A SP, A, 0293084 (LORD) 30 November 1988 (cited in the application)	
A Zr, A, 0303136 (MEMORIA) 15 Pubmary 1989 (cited in the application)	<u> </u>
They don't have been deaded as artists deaded or beginning to beginn the second	
A comment of the property of the party of th	
The second secon	
IV. GESTIFICATION	
28 February 1991 (29,02.91) 10 Noy 1991	10.05.911
bernam berney Arbeity Bernam Arbeits	
Daropeen Petent Office	

PCS/EP 90/02212

- Z8/0Z/91

DE-A-1629237 03-03-88 EP-A- 0261409 30-03- JP-A- 63064625 32-03- US-A- 63064625 32-03- US-A- 4857623 15-08- ZA-A- 8705410 29-02- EP-A-0326704 09-08-99 JP-A- 1287356 17-13- EP-A-0305805 08-03-89 DE-A- 3812462 09-03- JP-A- 1271460 30-10- EP-A-0268780 01-06-88 AP-B- 1272460 30-10- EP-A-0268780 01-06-88 AP-B- 1005266 12-03- JP-A- 1005266 12-03- JP-A- 4837274 08-06-
EP-A-0305805 08-03-89 05-A- 3812482 09-03- JP-A- 1271460 30-10- EP-A-0268780 01-06-88 AP-B- 99548 01-05- JP-A- 1003266 12-01- US-A- 4837274 06-06-
JP-A- 1271460 30-10- EP-A-0268780 01-06-88 A9-8- 995548 03-05- JP-A- 1003266 12-01- US-A- 4837274 06-06-
JP-A- 1005258 12-01- U5-A- 4837274 04-04-
and the second s
EP-A-0259644 16-03-88 0E-A- 3259061 03-03-
EP-A-0300304 25-01-09 DE-A- 3723936 02-02- JP-A- 1045457 17-02-
EP-A-0293084 30-11-88 JP-A- 63317516 26-12- US-A- 4902767 28-02-
EP-A-0303136 15-02-89 UE-A- 3725547 23-02- JP-A- 1070581 16-03- US-A- 4910242 20-03-

第1頁の絞き

❷Int.CL* 識別配号 庁内整理番号

C 09 K 3/10 D 9159-4 G 9159-4

#(C 08 L 75/04 83:04)

の発 明 者 マヨロ、マルテイーン

ドイツ連邦共和国 ディー5240 エルケレンツ、ザンクト・マルテ イヌスシュトラアセ 33番

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.